

d)

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-156967

(43)Date of publication of application : 17.06.1997

(51)Int.CI.

C03C 27/12
B32B 17/10
G10K 11/162
G10K 11/16

(21)Application number : 07-322915

(71)Applicant : SEKISUI CHEM CO LTD

(22)Date of filing : 12.12.1995

(72)Inventor : MIYAI JIRO

(54) INTERLAYER FOR SOUND INSULATING LAMINATED GLASS AND SOUND INSULATING LAMINATED GLASS

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an interlayer for a sound insulating laminated glass, having a small optical strain and excellent in sound insulating properties and also provide the sound insulating laminated glass using the interlayer.

SOLUTION: This interlayer for a sound insulating laminated glass is a laminated resin film of at least two layers comprising two kinds of plasticized polyvinyl acetal resin films A and B. The resin film A comprises a polyvinyl acetal resin, prepared by acetalizing polyvinyl alcohol with a 4-6C aldehyde and having 8-30mol% vinyl acetate component content and a plasticizer. The resin film B comprises a polyvinyl acetal resin, obtained by acetalizing the polyvinyl alcohol with a 3C or a 4C aldehyde and having ≤4mol% vinyl acetate component content and a plasticizer. The total film thickness of the resin film A is >25 and ≤55% based on the film thickness of the laminated resin film and ≥0.10mm. The objective laminated glass is obtained by using the resultant interlayer.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 06.05.1999

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3204890

[Date of registration] 29.06.2001

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-156967

(43)公開日 平成9年(1997)6月17日

| (51)Int.Cl. ⁶ | 識別記号 | 序内整理番号 | F I | 技術表示箇所 |
|--------------------------|------|--------|--------------|--------|
| C 03 C 27/12 | | | C 03 C 27/12 | D K |
| B 32 B 17/10 | | | B 32 B 17/10 | |
| G 10 K 11/162 | | | G 10 K 11/16 | A |
| 11/16 | | | | D |

審査請求 未請求 請求項の数2 O L (全 9 頁)

| | | |
|-------------------------|-------------------------------------|---|
| (21)出願番号 (22)出願日 | 特願平7-322915 平成7年(1995)12月12日 | (71)出願人 積水化学工業株式会社 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 (72)発明者 宮井 二郎 滋賀県甲賀郡水口町泉1259 積水化学工業 株式会社内 |
|-------------------------|-------------------------------------|---|

(54)【発明の名称】 遮音性合わせガラス用中間膜及び遮音性合わせガラス

(57)【要約】

【課題】 光学歪みが小さく且つ遮音性に優れた遮音性合わせガラス用中間膜及び遮音性合わせガラスを得る。

【解決手段】 この中間膜は、二種の可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜A及びBからなる少なくとも二層の積層樹脂膜であって、上記樹脂膜Aは、ポリビニルアルコールを炭素数4~6のアルデヒドでアセタール化して得られ、ビニルアセテート成分が8~30モル%のポリビニルアセタール樹脂(a)と可塑剤とからなり、上記樹脂膜Bは、ポリビニルアルコールを炭素数3又は4のアルデヒドでアセタール化して得られ、ビニルアセテート成分が4モル%以下のポリビニルアセタール樹脂(b)と可塑剤とからなり、上記樹脂膜Aの合計膜厚が上記積層樹脂膜の膜厚の25%を越え55%以下で且つ0.10mm以上である。この中間膜を用いて合わせガラスを得る。

【特許請求の範囲】

【請求項1】二種の可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜A及びBからなる少なくとも二層の積層樹脂膜であって、上記樹脂膜Aは、ポリビニルアルコールを炭素数4～6のアルデヒドでアセタール化して得られ、ビニルアセテート成分が8～30モル%のポリビニルアセタール樹脂(a)重量部と可塑剤とからなり、上記樹脂膜Bは、ポリビニルアルコールを炭素数3又は4のアルデヒドでアセタール化して得られ、ビニルアセテート成分が4モル%以下のポリビニルアセタール樹脂(b)と可塑剤とからなり、上記樹脂膜Aの合計膜厚が上記積層樹脂膜の膜厚の25%を越え55%以下で且つ0.10mm以上であることを特徴とする遮音性合わせガラス用中間膜。

【請求項2】少なくとも二枚のガラス板の間に、請求項1記載の合わせガラス用中間膜が挟着されていることを特徴とする遮音性合わせガラス。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、遮音性合わせガラス用中間膜及び遮音性合わせガラスに関する。

【0002】

【従来の技術】二枚の透明なガラス板の間に、可塑化ポリビニルブチラール樹脂からなる中間膜を接着させた合わせガラスは、透明性や耐候性がよく、しかも耐貫通性がよく、ガラス破片が飛散しにくい等の合わせガラスに必要な基本性能を有し、例えば、自動車や建築物の窓ガラスに広く使用されている。

【0003】この種の合わせガラスは、上記の基本性能が良好で安全性に優れているが、遮音性が劣る。特に、周波数2000Hz付近の中高音域において、コインシデンス効果によって音響透過損失量が低下して遮音性が低下する。コインシデンス効果とは、ガラスに音波が入射したとき、ガラスの剛性と慣性とによってガラス面上を横波が伝導し、この横波と入射音とが共鳴し、音の透過が起こる現象である。

【0004】遮音性に対する要求は最近ますます高まり、特に、建築用窓ガラスには、上記の基本性能が良好で安全性に優れているほか、優れた遮音性能有し、しかも合わせガラスを通して向こう側の像がゆがんで見えない所謂光学歪みの小さいものが要求されている。

【0005】このような遮音性合わせガラス用中間膜及び遮音性合わせガラスとして、二種の特定の可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜を用い、これを積層して構成した少なくとも二層の積層樹脂膜からなる遮音性合わせガラス用中間膜及び合わせガラスが提案されている（例えば、特開平7-97240号公報参照）。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】上記提案の遮音性合わせガラス用中間膜及び遮音性合わせガラスは、光学歪みと共に遮音性が相当に改善されている。この発明者は、

このような遮音性合わせガラス用中間膜及び遮音性合わせガラスの遮音性等の性能をさらに改善するために、種々の検討を行った。

【0007】その結果、上記二種の特定の可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜の膜厚さを特定の範囲に設定することによって、光学歪みが小さく且つ遮音性に優れた合わせガラスが得られるとの知見を得た。

【0008】この発明は、このような知見に基づいてなされたもので、透明性がよい、耐候性がよい、接着性がよい、耐貫通性がよい、ガラス破片が飛散しにくい等の合わせガラスに必要な基本性能を損なうことなく、光学歪みが小さく且つ遮音性に優れた遮音性合わせガラス用中間膜及び遮音性合わせガラスを提供するものである。

【0009】

【課題を解決するための手段】この発明の遮音性合わせガラス用中間膜は、二種の可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜A及びBからなる少なくとも二層の積層樹脂膜であって、上記樹脂膜Aは、ポリビニルアルコールを炭素数4～6のアルデヒドでアセタール化して得られ、ビニルアセテート成分が8～30モル%のポリビニルアセタール樹脂(a)と可塑剤とからなり、上記樹脂膜Bは、ポリビニルアルコールを炭素数3又は4のアルデヒドでアセタール化して得られ、ビニルアセテート成分が4モル%以下のポリビニルアセタール樹脂(b)と可塑剤とからなり、上記樹脂膜Aの合計膜厚が上記積層樹脂膜の膜厚の25%を越え55%以下で且つ0.10mm以上であることを特徴とする。

【0010】また、この発明の遮音性合わせガラスは、少なくとも二枚のガラス板の間に、上記の合わせガラス用中間膜が挟着されていることを特徴とする。

【0011】この発明において、ポリビニルアセタール樹脂(a)及び(b)の調製に使用するポリビニルアルコールとしては、平均重合度500～3000のものが好ましく、平均重合度1000～2500のものがさらに好ましい。この平均重合度が500未満であると合わせガラスの耐貫通性が低下する。逆に、平均重合度が3000を越えると樹脂膜の成形が難しくなり、しかも樹脂膜の強度が強くなりすぎて適当でない。

【0012】また、ポリビニルアルコールの鹼化度は、樹脂(a)の調製においてはビニルアセテート成分を8～30モル%に設定せねばならないので、鹼化度92～70モル%のものが用いられる。また、樹脂(b)の調製においてはビニルアセテート成分を4モル%以下に設定せねばならないので、鹼化度96モル%以上のものが用いられる。ここで、ポリビニルアルコールの平均重合度及び鹼化度は、例えば、JIS K 6726「ポリビニルアルコール試験方法」に基づいて測定することができる。

【0013】ポリビニルアセタール樹脂(a)の調製において、炭素数4～6のアルデヒドとしては、n-ブチル

アルデヒド、イソブチルアルデヒド、バレルアルデヒド、n-ヘキシリアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド等が単独或いは二種以上組み合わせて用いられる。

【0014】樹脂(a)の調製において、アルデヒドの炭素数が3以下では十分な遮音性を得ることができない。逆に、アルデヒドの炭素数が7以上ではアセタール化の反応性が低下し、しかも室温付近での遮音性が十分発揮されない。特に、n-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、n-ヘキシリアルデヒドの単独或いは二種又は三種の組み合わせが好ましい。

【0015】また、ポリビニルアセタール樹脂(b)の調製において、炭素数3又は4のアルデヒドとしては、プロピオンアルデヒド、n-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒドが単独或いは二種以上の組み合わせて用いられる。

【0016】樹脂(b)の調製において、アルデヒドの炭素数が2以下では樹脂膜の成形性が低下し、逆にアルデヒドの炭素数が5以上ではアセタール化の反応性が低下し、しかも室温付近での遮音性が十分発揮されない。特に、n-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒドの単独或いは二種の組み合わせが好ましい。

【0017】特に、上記樹脂(a)及び樹脂(b)は、いずれも炭素数4のn-ブチルアルデヒドでアセタール化して得られたものが好ましい。n-ブチルアルデヒドでアセタール化した樹脂の使用により、各樹脂膜の接着強度が強くなり、また耐候性にも優れ、しかも樹脂の製造も容易である。

【0018】ポリビニルアセタール樹脂(a)及び(b)の調製方法としては、公知のいかなる方法でもよい。例えば、ポリビニルアルコールを温水に溶解し、得られた水溶液を所定の温度、例えば0~95℃に保持しておいて、所要の酸触媒及びアルデヒドを加え、攪拌しながらアセタール化反応を進行させ、次いで反応温度を上げて熟成し反応を完結させ、その後、中和、水洗及び乾燥を行って樹脂(a)及び樹脂(b)の粉末を得る。

【0019】得られるポリビニルアセタール樹脂(a)及び(b)は、ビニルアセタール成分とビニルアルコール成分とビニルアセテート成分とから構成されている。これ等の各成分量は、例えば、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」や核磁気共鳴法(NMR)に基づいて測定することができる。

【0020】なお、ポリビニルブチラール樹脂以外のポリビニルアセタール樹脂の場合は、ビニルアルコール成分量とビニルアセテート成分量とを測定し、残りのビニルアセタール成分量は100から上記両成分量を差し引くことにより算出することができる。

【0021】また、アセタール化度も上記試験方法や核磁気共鳴法(NMR)に基づいて測定することができる。ここで、樹脂(a)のアセタール化度は40~75モル%が好ましい。このアセタール化度が40モル%未満

では、可塑剤との相溶性が良くなく、遮音性能を発揮するのに必要な可塑剤量を含有させることが難しくなる。逆に、アセタール化度が75モル%を越えると、このような樹脂を得るために長時間の反応時間を要する。

【0022】また、樹脂(b)のアセタール化度は50~75モル%が好ましい。このアセタール化度が50モル%未満では、可塑剤との相溶性が良くなく、耐貫通性確保に必要な可塑剤量を含有させることが難しくなる。逆に、アセタール化度が75モル%を越えると、このような樹脂を得るために長時間の反応時間を要する。

【0023】この発明においては、樹脂(a)のビニルアセテート成分の含有量は8~30モル%でなければならない。このビニルアセテート成分の含有量が8モル%未満では遮音性能が充分に発揮されず、逆にビニルアセテート成分の含有量が30モル%を超えると樹脂の製造時にプロッキングを起こし易くなり、製造に困難をともなう。特に、このビニルアセテート成分の含有量は10~19モル%が好ましい。

【0024】また、樹脂(b)のビニルアセテート成分の含有量は4モル%以下でなければならない。このビニルアセテート成分の含有量が4モル%を超えると、樹脂膜A及びBとの粘弾性的性質が類似したものとなり、広い温度領域での遮音性能が充分に発揮されない。特に、このビニルアセテート成分の含有量は0~2モル%が好ましい。

【0025】このようにして調製されたポリビニルアセタール樹脂(a)とポリビニルアセタール樹脂(b)に、それぞれ所定量の可塑剤が配合され、これを押出法、カレンダー法、プレス法等によりシート状に製膜して樹脂膜Aと樹脂膜Bとを成形する。また、上記樹脂(a)と樹脂(b)に、それぞれ所定量の可塑剤を混合し、これを多層押出法により一体に成形することもできる。

【0026】可塑剤としては、この種の中間膜に用いられている公知の可塑剤、例えば、一塩基酸エステル、多塩基酸エステル等の有機系可塑剤や、有機リン酸系、有機亜リン酸系等のリン酸系可塑剤等が用いられる。

【0027】一塩基酸エステルの中では、例えば、トリエチレングリコールと、酪酸、イソ酪酸、カプロン酸、2-エチル酪酸、ヘプタン酸、n-オクチル酸、2-エチルヘキシリ酸、ペラルゴン酸(n-ノニル酸)、デシル酸等の有機酸との反応によって得られたグリコール系エステルが好ましい。その他、テトラエチレングリコール、トリプロピレングリコールと上記の如き有機酸とのエステルも用いられる。

【0028】多塩基酸エステルとしては、例えば、アジピン酸、セバチン酸、アゼライン酸等の有機酸と炭素数4~8の直鎖状又は分枝状アルコールとのエステルが好ましい。また、リン酸系可塑剤としては、トリプトキシエチルフォスフェート、イソデシルフェニルホスフェート、トリイソプロピルホスファイト等が好ましい。

【0029】特に、トリエチレングリコールジー2-エチルブチレート、トリエチレングリコールジー2-エチルヘキソエート、トリエチレングリコールジカブリレート、トリエチレングリコールジー n -オクトエート、トリエチレングリコールジー n -ヘプトエート、テトラエチレングリコールジー n -ヘプトエート、その他ジブチルセバケート、ジオクチルアゼレート、ジブチルカルビトールアジペートが好適に用いられる。

【0030】そして、ポリビニルアセタール樹脂(a)に配合される可塑剤量は、ポリビニルアセタール樹脂(a)100重量部に対して35~70重量部とされる。この可塑剤量が35重量部未満であると遮音性が充分に得られず、逆に可塑剤量が70重量部を超えても遮音性が充分に得られないことがあり、しかも可塑剤がブリードして、光学歪みが大きくなったり、樹脂膜の透明性や接着性が低下する。特に、この可塑剤量は40~60重量部が好ましい。

【0031】また、ポリビニルアセタール樹脂(b)に配合される可塑剤量は、ポリビニルアセタール樹脂(b)100重量部に対して25~55重量部とされる。この可塑剤量が25重量部未満であると耐貫通性が低下し、逆に可塑剤量が55重量部を超えると可塑剤がブリードして、光学歪みが大きくなったり、樹脂膜の透明性や接着性が低下する。特に、この可塑剤量は30~45重量部が好ましい。さらに、樹脂膜A、B間での可塑剤の移行を抑えるために、上記樹脂(a)に対する可塑剤量は、上記樹脂(b)に対する可塑剤量よりも多く含有させるのが好ましい。

【0032】なお、樹脂(a)又は樹脂(b)には、紫外線吸収剤、光安定剤、酸化防止剤、接着性調整剤、界面活性剤、着色剤など合わせガラス用中間膜に使用されている公知の添加剤を配合することができる。

【0033】紫外線吸収剤としては、ベンゾトリアゾール系のもの、例えば、チバガイギー社製のチヌビンP(商品名)、チヌビン320(商品名)、チヌビン326(商品名)、チヌビン328(商品名)等が挙げられる。光安定剤としては、ヒンダードアミン系のもの、例えば、旭電化社製のアデカスタブルA-57(商品名)等が挙げられる。

【0034】酸化防止剤としては、フェノール系のもの、例えば、住友化学社製のスミライザーBHT(商品名)、チバガイギー社製のイルガノックス1010(商品名)等が挙げられる。

【0035】接着性調整剤としては、カルボン酸の金属塩、例えば、オクチル酸、ヘキシル酸、酪酸、酢酸、蟻酸等のカリウム塩やナトリウム塩が挙げられる。また、界面活性剤としては、ラウリル硫酸ナトリウム、アルキルベンゼンスルホン酸等が挙げられる。

【0036】この発明の遮音性合わせガラス用中間膜は、前述のように樹脂膜AとBとを多層押出法により一

体成形する方法、或いは別々に成形した樹脂膜AとBとを重ねて加熱加圧することにより一体化する方法、或いは樹脂膜AとBとを少なくとも二枚のガラス板の間に重ねて加熱加圧することにより一体化して、合わせガラスの製造と同時に成形する方法等により製造することができる。

【0037】少なくとも二枚のガラス板の間に、上記合わせガラス用中間膜が挟着された遮音性合わせガラスを製造するには、通常の合わせガラスの製法が採用される。例えば、二枚の透明なガラス板の間に上記中間膜或いは樹脂膜AとBを挟み、これをゴムパックに入れ減圧吸引しながら約70~110°Cで予備接着し、次いで、オートクレーブを用いるか或いはプレスを用い、約120~150°Cで、約1.0~1.5 kg/cm²の圧力で本接着を行うことにより製造される。

【0038】樹脂膜AとBによる積層構成は、例えば、下記のような積層構成とされる。

- ①樹脂膜A/樹脂膜Bの2層積層構成。
- ②樹脂膜A/樹脂膜B/樹脂膜A、又は樹脂膜B/樹脂膜A/樹脂膜Bの3層積層構成。
- ③樹脂膜A/樹脂膜B/樹脂膜A/樹脂膜Bの4層積層構成。

なお、上記樹脂膜A及びBには、例えば、樹脂膜A/樹脂膜A、樹脂膜B/樹脂膜Bのように同種の樹脂膜を重ねて使用してもよい。

【0039】上記いずれの積層構成においても、両側の最外層には樹脂膜Bが配置されるように積層するのが好ましい。この配置により、ガラス板と中間膜の合わせ加工に当たり、ポリビニルブチラール系中間膜の場合に匹敵する良好な作業性が得られ、従来の技術をそのまま利用できる。また、ガラスとの接着性及び耐候性の点でも好ましい。

【0040】積層樹脂膜(中間膜)の全体の膜厚は、厚いほうが遮音性はよいが、合わせガラスとして最小限必要な耐貫通性や耐候性を考慮すると、実用的には通常の合わせガラス用中間膜における膜厚と同様に、一般に0.3~1.6mmの範囲が好ましい。しかし、上記樹脂膜Aの合計膜厚が上記積層樹脂膜(中間膜)の膜厚の25%を越え55%以下で且つ0.10mm以上でなければならない。

【0041】上記樹脂膜Aの合計膜厚が上記積層樹脂膜の膜厚の25%以下の場合でも遮音性は良好であるが、25%を越えるとさらに遮音性が改善される。しかし、55%を越えると光学歪みが大きくなるとともに、耐衝撃エネルギー吸収性等の合わせガラスに必要な基本性能が低下する。また、樹脂膜Aの合計膜厚が0.10mm未満の場合でも遮音性は良好であるが、0.10mm以上となるとさらに遮音性が改善される。

【0042】なお、ガラス板としては、無機透明ガラス板のみならず、ポリカーボネート板、ポリメチルメタク

リレート板などの有機透明ガラス板も使用することができる。

【0043】(作用)遮音性合わせガラス用中間膜が、上述の樹脂膜AとBとから構成されると、樹脂膜Aにより、主に遮音性と光学歪みが改善される。すなわち、合わせガラス(中間膜)が音波により曲げ変形するときに、粘弾性的性質が異なる樹脂膜A、Bの界面での内部摩擦効果(拘束層的効果)によって音エネルギーが熱エネルギーに効率よく変換吸収され、特に2000Hz付近の中高温域におけるコインシデンス効果による遮音性の低下が効果的に防止される。

【0044】しかも、樹脂膜AとBとの粘弾性的性質に差異があるものの、その差異は比較的小さな差異であり、これ等の樹脂膜を積層して中間膜とする時や合わせガラスに加工する時に、各樹脂膜の界面に微小な乱れの生じるのが防止され界面が均一となって、光学歪み(像のゆがみ)が小さくなる。また、樹脂膜Bにより、主に、透明性、耐候性、接着性、耐貫通性、ガラス破片の飛散等の基本性能が保持される。

【0045】

【発明の実施の形態】以下、この発明の実施例及び比較例を示す。

実施例1

樹脂(a) 及び樹脂膜Aの調製

純水2890gに、重合度1700、ケン化度88モル%のポリビニルアルコール191gを加えて加温溶解した。反応系を12℃に温度調節し、35重量%の塩酸触媒201gとn-ヘキシルアルデヒド130gを加え、この温度を保持して反応物を析出させた。

【0046】その後、反応系を50℃で5時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を中和し、水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルアセタール樹脂(a)を得た。この樹脂(a)のアセタール化度は、60.2モル%、ビニルアセテート成分は12モル%であった。

【0047】上記樹脂(a)100重量部と、可塑剤としてトリエチレンジリコールジ-2-エチルブチレート50重量部とを混合し、これをミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機で150℃、30分間プレス成形して、厚さ0.12mmの樹脂膜Aを得た。

樹脂(b) 及び樹脂膜Bの調製

純水2910gに、重合度1700、ケン化度99モル%のポリビニルアルコール190gを加えて加温溶解した。反応系を12℃に温度調節し、35重量%の塩酸触媒201gとn-ブチルアルデヒド124gを加え、この温度を保持して反応物を析出させた。

【0049】その後、反応系を50℃で4時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を中和し、水洗及び

乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルアセタール樹脂(b)を得た。この樹脂(b)のアセタール化度は66.3モル%、ビニルアセテート成分は1モル%であった。

【0050】上記樹脂(b)100重量部と、可塑剤としてトリエチレンジリコールジ-2-エチルブチレート40重量部とを混合し、これをミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機で150℃、30分間プレス成形して、厚さ0.13mmの樹脂膜Bを得た。

【0051】中間膜及び合わせガラスの作製

上記樹脂膜AとBを用い、これを樹脂膜B／樹脂膜A／樹脂膜Bの順に重ね合わせ、両側から透明なフロートガラス(縦30cm×横30cm×厚さ3mm)で挟み、これをゴムバッグ内に入れ20torrの真空度で20分間脱気した後、脱気したまま80℃のオーブンに移し、さらに80℃で5分間保持しつつ真空プレスした。

【0052】このようにして予備接着された合わせガラスを、エアー式オートクレーブ中で圧力12kg/cm²、温度135℃の条件で20分間本接着を行い、中間膜がB(0.13mm)／A(0.12mm)／B(0.13mm)の積層構成をもった透明な合わせガラスを得た。

【0053】実施例2

樹脂(a) 及び樹脂膜Aの調製

純水2890gに、重合度1700、ケン化度91モル%のポリビニルアルコール191gを加えて加温溶解した。反応系を12℃に温度調節し、35重量%の塩酸触媒201gとn-ヘキシルアルデヒド130gを加え、この温度を保持して反応物を析出させた。

【0054】その後、反応系を50℃で5時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ヘキシルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を中和し、水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルアセタール樹脂(a)を得た。この樹脂(a)のアセタール化度は、64モル%、ビニルアセテート成分は9モル%であった。

【0055】上記樹脂(a)100重量部と、可塑剤としてトリエチレンジリコールジ-2-エチルブチレート50重量部とを混合し、これをミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機で150℃、30分間プレス成形して、厚さ0.15mmの樹脂膜Aを得た。

【0056】樹脂(b) 及び樹脂膜Bの調製

純水2910gに、重合度1700、ケン化度98モル%のポリビニルアルコール190gを加えて加温溶解した。反応系を12℃に温度調節し、35重量%の塩酸触媒201gとn-ブチルアルデヒド124gを加え、この温度を保持して反応物を析出させた。

【0057】その後、反応系を50℃で4時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を中和し、水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルアセタール樹脂(b)を得た。この樹脂(b)のアセタール化度は64モル%、ビニルアセテート成分は2モル%であった。

9

【0058】上記樹脂(b) 100重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジー2-エチルブチレート40重量部とを混合し、これをミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機で150℃、30分間プレス成形して、厚さ0.12mmの樹脂膜Bを得た。

【0059】それ以外は、実施例1と同様に行って、中間膜がB(0.12mm)/A(0.15mm)/B(0.12mm)の積層構成をもった合わせガラスを得た。

【0060】実施例3

樹脂(a) 及び樹脂膜Aの調製

純水2890gに、重合度1700、ケン化度73モル%のポリビニルアルコール191gを加えて加温溶解した。反応系を12℃に温度調節し、35重量%の塩酸触媒201gとn-ブチルアルデヒド130gを加え、この温度を保持して反応物を析出させた。

【0061】その後、反応系を50℃で5時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を中和し、水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルアセタール樹脂(a)を得た。この樹脂(a)のアセタール化度は、45モル%、ビニルアセテート成分は27モル%であった。

【0062】上記樹脂(a) 100重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジー2-エチルブチレート50重量部とを混合し、これをミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機で150℃、30分間プレス成形して、厚さ0.20mmの樹脂膜Aを得た。

【0063】樹脂(b) 及び樹脂膜Bの調製

純水2910gに、重合度1700、ケン化度99モル%のポリビニルアルコール190gを加えて加温溶解した。反応系を12℃に温度調節し、35重量%の塩酸触媒201gとn-ブチルアルデヒド124gを加え、この温度を保持して反応物を析出させた。

【0064】その後、反応系を50℃で4時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を中和し、水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルアセタール樹脂(b)を得た。この樹脂(b)のアセタール化度は65モル%、ビニルアセテート成分は1モル%であった。

【0065】上記樹脂(b) 100重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジー2-エチルブチレート40重量部とを混合し、これをミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機で150℃、30分間プレス成形して、厚さ0.12mmの樹脂膜Bを得た。

【0066】それ以外は、実施例1と同様に行って、中間膜がB(0.12mm)/A(0.20mm)/B(0.12mm)/A(0.20mm)/B(0.12mm)の積層構成をもった透明な合わせガラスを得た。

【0067】比較例1

樹脂(a) 及び樹脂膜Aの調製

純水2890gに、重合度1700、ケン化度88モル%

50

10

%のポリビニルアルコール191gを加えて加温溶解した。反応系を12℃に温度調節し、35重量%の塩酸触媒201gとn-ブロピルアルデヒド130gを加え、この温度を保持して反応物を析出させた。

【0068】その後、反応系を50℃で5時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブロピルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を中和し、水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルアセタール樹脂(a)を得た。この樹脂(a)のアセタール化度は63モル%、ビニルアセテート成分は12モル%であった。

【0069】上記樹脂(a) 100重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジー2-エチルブチレート50重量部とを混合し、これをミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機で150℃、30分間プレス成形して、厚さ0.12mmの樹脂膜Aを得た。

【0070】樹脂(b) 及び樹脂膜Bの調製

純水2910gに、重合度1700、ケン化度99モル%のポリビニルアルコール190gを加えて加温溶解した。反応系を12℃に温度調節し、35重量%の塩酸触媒201gとn-ブチルアルデヒド124gを加え、この温度を保持して反応物を析出させた。

【0071】その後、反応系を50℃で4時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を中和し、水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルアセタール樹脂(b)を得た。この樹脂(b)のアセタール化度は65モル%、ビニルアセテート成分は1モル%であった。

【0072】上記樹脂(b) 100重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジー2-エチルブチレート40重量部とを混合し、これをミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機で150℃、30分間プレス成形して、厚さ0.13mmの樹脂膜Bを得た。

【0073】それ以外は、実施例1と同様に行って、中間膜がB(0.13mm)/A(0.12mm)/B(0.13mm)の積層構成をもった透明な合わせガラスを得た。

【0074】比較例2

樹脂(a) 及び樹脂膜Aの調製

純水2890gに、重合度1700、ケン化度94モル%のポリビニルアルコール191gを加えて加温溶解した。反応系を12℃に温度調節し、35重量%の塩酸触媒201gとn-ブチルアルデヒド130gを加え、この温度を保持して反応物を析出させた。

【0075】その後、反応系を50℃で5時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を中和し、水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルアセタール樹脂(a)を得た。この樹脂(a)のアセタール化度は64モル%、ビニルアセテート成分は6モル%であった。

【0076】上記樹脂(a) 100重量部と、可塑剤とし

II

てトリエチレングリコールジーゼ-エチルブチレート50重量部とを混合し、これをミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機で150℃、30分間プレス成形して、厚さ0.12mmの樹脂膜Aを得た。

【0077】樹脂(b) 及び樹脂膜Bの調製

純水2910gに、重合度1700、ケン化度99モル%のポリビニルアルコール190gを加えて加温溶解した。反応系を12℃に温度調節し、35重量%の塩酸触媒201gとn-ブチルアルデヒド124gを加え、この温度を保持して反応物を析出させた。

【0078】その後、反応系を50℃で4時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を中和し、水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルアセタール樹脂(b)を得た。この樹脂(b)のアセタール化度は65モル%、ビニルアセテート成分は1モル%であった。

【0079】上記樹脂(b)100重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジーゼ-エチルブチレート40重量部とを混合し、これをミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機で150℃、30分間プレス成形して、厚さ0.13mmの樹脂膜Bを得た。

【0080】それ以外は、実施例1と同様に行って、中間膜がB(0.13mm)/A(0.12mm)/B(0.13mm)の積層構成をもった透明な合わせガラスを得た。

【0081】比較例3

樹脂(a) 及び樹脂膜Aの調製

純水2890gに、重合度1700、ケン化度88モル%のポリビニルアルコール191gを加えて加温溶解した。反応系を12℃に温度調節し、35重量%の塩酸触媒201gとn-ブチルアルデヒド130gを加え、この温度を保持して反応物を析出させた。

【0082】その後、反応系を50℃で5時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を中和し、水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルアセタール樹脂(a)を得た。この樹脂(a)のアセタール化度は60モル%、ビニルアセテート成分は12モル%であった。

【0083】上記樹脂(a)100重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジーゼ-エチルブチレート50重量部とを混合し、これをミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機で150℃、30分間プレス成形して、厚さ0.08mmの樹脂膜Aを得た。

【0084】樹脂(b) 及び樹脂膜Bの調製

純水2910gに、重合度1700、ケン化度99モル%

10

12

%のポリビニルアルコール190gを加えて加温溶解した。反応系を12℃に温度調節し、35重量%の塩酸触媒201gとn-ブチルアルデヒド124gを加え、この温度を保持して反応物を析出させた。

【0085】その後、反応系を50℃で4時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を中和し、水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルアセタール樹脂(b)を得た。この樹脂(b)のアセタール化度は65モル%、ビニルアセテート成分は1モル%であった。

【0086】上記樹脂(b)100重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジーゼ-エチルブチレート40重量部とを混合し、これをミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機で150℃、30分間プレス成形して、厚さ0.15mmの樹脂膜Bを得た。

【0087】それ以外は、実施例1と同様に行って、中間膜がB(0.15mm)/A(0.08mm)/B(0.15mm)の積層構成をもった透明な合わせガラスを得た。

20

【0088】こうして得られた上記実施例1～3及び比較例1～3の遮音性合わせガラスについて、遮音性及び光学歪みを、次の方法で評価した。その結果をまとめて表1(実施例)及び表2(比較例)に示す。

【0089】<遮音性の評価>上記合わせガラスから試料を切り出し、この試料をダンピング試験用の振動発生機(振研社製の加振機「G21-005D」)により加振し、そこから得られる振動特性を、機械インピーダンスアンプ(リオン社製の「XC-81」)にて増幅し、振動スペクトルをFFTスペクトラムアナライザー(横河ヒューレットパッカード社製の「FFTアナライザーハイ3582A」)により解析した。

【0090】こうして得られた損失係数と、ガラスとの共振周波数との比から、20℃における音周波数(Hz)と音響透過損失(dB)との関係を示すグラフを作成し、音周波数2000Hz近辺における極小の音響透過損失(TL値)を求めた。このTL値が高いほど遮音性がよくなる。

30

【0091】<光学歪み>上記合わせガラスに、ハロゲンランプにてスリットを透過させた光源を当て、スクリーンに写った投影歪みをセンサー(カメラ)にて受動し、パソコンにてデーター処理を行い、光学歪み値とした。この値が高いほど光学歪み(像のゆがみ)が少なくなる。

【0092】

【表1】

13

14

| | | | 実施例1 | 実施例2 | 実施例3 |
|--------|-------------------------------|-----------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| 樹脂膜の組成 | 樹脂膜A | アルデヒドの種類 ビニルアセテート成分(モル%) | n-ブチルアルデヒド(C4) 12 | n-ヘキサルアルデヒド(C6) 9 | n-ブチルアルデヒド(C4) 27 |
| | | アセタール化度(モル%) | 60.2 | 64.0 | 45.0 |
| | | 可塑剤量(重量部) 膜厚(mm) | 5.0 0.12 | 5.0 0.15 | 5.0 0.20 |
| | B | アルデヒドの種類 ビニルアセテート成分(モル%) | n-ブチルアルデヒド(C4) 1 | n-ブロピルアルデヒド(C3) 1 | n-ブチルアルデヒド(C4) 1 |
| 中間膜 | 樹脂膜A、B | アセタール化度(モル%) | 66.3 | 64.0 | 65.0 |
| | | 可塑剤量(重量部) | 4.0 | 4.0 | 4.0 |
| | | 膜厚(mm) | 0.13 | 0.12 | 0.12 |
| 性能 | 積層構成(樹脂膜A、B) 樹脂膜Aの合計膜厚(mm) | | B/A/B 0.12 | B/A/B 0.15 | B/A/B/A/B 0.40 |
| | 積層樹脂膜(中間膜)の膜厚(mm) | | 0.38 | 0.39 | 0.76 |
| | 樹脂膜Aの合計膜厚(mm)の比率(%) | | 31.6 | 38.5 | 52.6 |
| | 透過損失(TL値)(dB) | 37 | 39 | 39 | |
| | 光学歪み | 10 | 12 | 9 | |

【0093】

【表2】

| | | | 比較例 1 | 比較例 2 | 比較例 3 |
|----------|---------------------|-----------------------------|------------------------|---------------------|-----------------------|
| 樹脂膜 A | 樹脂膜 | アルデヒドの種類 ビニルアセテート成分(モル%) | n-ブロピルアルデヒド(C3) 1 2 | n-ブチルアルデヒド(C4) 9 | n-ブチルアルデヒド(C4) 1 2 |
| | | アセタール化度(モル%) | 6 3.0 | 6 4.0 | 6 0.0 |
| | | 可塑剤量(重量部) | 5 0 | 5 0 | 5 0 |
| | | 膜厚(mm) | 0.1 2 | 0.1 2 | 0.0 8 |
| 樹脂膜 B | 樹脂膜 | アルデヒドの種類 ビニルアセテート成分(モル%) | n-ブチルアルデヒド(C4) 1 | n-ブチルアルデヒド(C4) 1 | n-ブチルアルデヒド(C4) 1 |
| | | アセタール化度(モル%) | 6 5.0 | 6 5.0 | 6 5.0 |
| | | 可塑剤量(重量部) | 4 0 | 4 0 | 4 0 |
| | | 膜厚(mm) | 0.1 3 | 0.1 3 | 0.1 5 |
| 中間膜 | 積層構成(樹脂膜A、B) | | B/A/B | B/A/B | B/A/B |
| | 樹脂膜Aの合計膜厚(mm) | | 0.1 2 | 0.1 2 | 0.0 8 |
| | 積層樹脂膜(中間膜)の膜厚(mm) | | 0.3 8 | 0.3 8 | 0.3 8 |
| | 樹脂膜Aの合計膜厚(mm)の比率(%) | | 3 1.6 | 3 1.6 | 2 1.1 |
| 性能 | 透過損失(TL値)(dB) | | 3 3 | 3 4 | 3 5 |
| | 光学歪み | | 9 | 1 0 | 8 |

【0094】

【発明の効果】上述の通り、この発明の遮音性合わせガラス用中間膜及び遮音性合わせガラスは、従来技術と同様なポリビニルアセタール樹脂を使用しているので、透明性がよい、耐候性がよい、接着性がよい、耐貫通性がよい、ガラス破片が飛散しにくい等の合わせガラスに必

要な基本性能を有する。しかも、樹脂膜AとBとの作用により、光学歪みが小さく且つ遮音性に優れる。

【0095】したがって、この発明の遮音性合わせガラス用中間膜及び遮音性合わせガラスは、特に、高い遮音性能が要求される建築物の窓ガラス等に好適である。

HIS PAGE BLANK (USPTO)